

# 反应堆控制棒铪板性能研究

黄洪文<sup>1</sup>, 武宇<sup>2</sup>, 叶林<sup>1</sup>, 杨大为<sup>1</sup>

(1. 中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 四川绵阳 621900;

2. 西部金属材料股份公司, 陕西西安 710065)

**摘要:** 铪材因其具有良好的综合性能, 是反应堆控制棒的首选材料。在反应堆控制棒用铪材研制过程中, 对化学成分、机械性能、腐蚀性能、物理性能等进行了试验研究。结果表明, 铪材制造工艺合理, 材料性能优良, 满足控制棒材料的使用要求。

**关键词:** 控制棒; 铪板; 化学成分; 机械性能

中图分类号: TL345

文献标志码: A

文章编号: 1000-6931(2009)S1-0316-03

## Research of Hafnium Characteristic for Control Rod of Reactor

HUANG Hong-wen<sup>1</sup>, WU Yu<sup>2</sup>, YE Lin<sup>1</sup>, YANG Da-wei<sup>1</sup>

(1. Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China; 2. Western Metal Materials Co., Ltd., Xi'an 710065, China)

**Abstract:** Metallic hafnium possesses a combination of properties which makes it the preferred material for control rods of nuclear reactors. The chemical composition, mechanical property, the corrosion resistance and the physical characteristics of hafnium were researched during the development of hafnium for control rods of reactors. The results show that the manufacturing method of hafnium plate is appropriate, and the characteristics of materials meet the requirement of control rods.

**Key words:** control rod; hafnium plate; chemical composition; mechanical property

铪是有效的长寿命中子吸收材料, 其热中子吸收截面很大, 高达  $1.15 \times 10^{-26} \text{ m}^2$ , 且在超热中子吸收范围内有良好的共振吸收<sup>[1]</sup>, 发生裂变反应后的每一代产物仍是铪。银-铟-镉合金在辐照后会以很长的半衰期发射  $\gamma$  射线, 而铪则无此现象, 在核反应堆中使用较安全。铪经辐照后生成新的同位素时, 中子俘获截面变化很小, 其物理价值损失也较少。此外, 铪还具有良好的力学性能、耐辐照性能、耐腐蚀性能、

熔点高和热膨胀小等特点, 作为控制棒材料被广泛应用于各种类型的反应堆。20世纪50年代, 美国第1艘核动力潜艇(鸚鵡螺号)的反应堆首次用铪作为控制棒, 20世纪80年代, 美国平均每年用于核反应堆的铪达26 t, 占铪材消费量的50%以上。

通常, 铪的制备是以锆砂为原料, 经萃取分离制得氧化铪, 再经氯化、提纯, 用镁还原四氯化铪, 即可制得海绵铪。海绵铪不具备塑性, 加

工前需进行熔铸。用于核反应堆的金属铅需用特殊的工艺进行加工,在保护性气氛下熔炼成铅锭,经锻造、喷砂、酸洗、冷轧、加工成带材。本工作以结晶海绵铅为原料进行控制棒铅板的制备,对铅板化学成分、机械性能、腐蚀性能和物理性能等进行试验研究。

## 1 化学成分

作为中子吸收材料,铅板中杂质含量将影响其物理价值及机械等性能。试验<sup>[2]</sup>发现:含氧量高(2.85%)的铅管塑性差,易于发生脆断;适量的合金元素如锆(3%~5%)或 Nb 等可提高铅管的塑性;加入铁、硅等元素可细化晶粒,提高强度。另外,欲在氧含量低的同时保证较小的晶粒尺寸,可通过热轧变形过程来实现。与锆相比,铅塑性较差,受杂质含量影响大,不

易于冷加工成型,氧、铁掺杂元素或其他杂质碳、氮等可较大程度地改变铅的力学性能。冷作硬化也会使铅管硬度增大。另外,铅管内部不应存在微裂纹,否则,易使氢渗入而引起氢脆,出现断裂失效行为。

结晶海绵铅棒经两次熔炼和提纯形成铅铸锭后,从铸锭的中上部和中下部分别取样,进行辉光放电(GDMS)质谱分析。实测结果表明,铅的纯度达到了 99.2% 以上,其锆含量小于 0.74%,其余各种微量元素含量小于 0.01%。化学成分实测结果与美国材料实验协会(ASTM)标准的对比列于表 1。从表 1 可看出,各种微量元素含量均小于 ASTM B776—91 核级铅材化学成分的要求(表中除铅外未给出的元素为痕量元素,其质量分数小于仪器的检测限)。

表 1 核纯级铅材化学成分(质量分数,  $10^{-6}$ )

Table 1 Chemical composition of nuclear-purity hafnium (mass fraction,  $10^{-6}$ )

元素	ASTM 标准	实测结果		元素	ASTM 标准	实测结果	
		中上部	中下部			中上部	中下部
Mg	—	<0.05	<0.05	Cu	100	0.85	0.33
Al	100	0.30	0.06	Zr	实测	6 021	7 357
Si	100	2.2	0.3	Nb	100	47	0.94
Ca	—	0.35	0.01	Mo	20	1.4	0.06
Ti	100	8.5	3.1	Sn	50	0.07	0.08
V	50	0.03	0.02	Ta	200	170	160
Cr	100	0.62	0.24	W	150	4.9	0.7
Mn	—	0.01	0.003	U	10	<0.005	<0.005
Fe	500	2.0	1.5	N	100	20	20
Co	—	0.009	<0.005	C	150	50	50
Ni	50	0.15	0.16	O	100	30	30

## 2 机械性能

铅的机械性能受多种因素影响,与原料冶炼、加工工艺、热处理过程、材料组织结构、晶粒度、杂质含量及产品形状、几何尺寸等均有关。

铅铸锭经超声波探伤检测合格后进行锻造、轧制、表面处理、真空退火等工艺,然后机械加工成铅板机械性能试验标准样,进行机械性能试验。由于机械性能与退火温度有关,故进行了各种退火温度下的试验,结果列于表 2。最终确定铅板的退火温度为 480~500 °C,保温 1 h,对 3 块铅板试样进行了实测。实测结果为抗拉强度  $\geq 455$  MPa,屈服强度  $\geq 236$  MPa,延

伸率  $\geq 29\%$ ,满足 ASTM 标准要求。

## 3 冲击韧性

在轧制完成后的铅板上取 4 个 5.6 mm  $\times$  12 mm  $\times$  57 mm 的样品进行冲击试验,试验结果列于表 3。

## 4 腐蚀性能

铅是一种耐腐蚀性很好的金属,微溶于王水,在溴酸、碘酸、高氯酸和磷酸等无机酸中相当稳定,但在溶液中加入氟化氢,则腐蚀速度会加快<sup>[3]</sup>。为了研究在中子辐照条件下铅的腐蚀

表 2 铪板机械性能试验结果

Table 2 Test results of mechanical property for hafnium plate

序号	退火状态	试验温度/℃	抗拉强度/MPa	屈服强度/MPa	延伸率/%
1	M,750 °C,1 h	室温	335	166	45
2	M,720 °C,1 h	室温	340	235	43
3	M,600 °C,1 h	室温	405	189	36
4	M,500 °C,1 h	室温	464	243	31
5	M,450 °C,1 h	室温	450	260	37
6	未退火	室温	530	385	15
ASTM 标准		室温	400	151	20

表 3 铪板冲击试验结果

Table 3 Result of shock testing for hafnium plate

编号	试验条件	单位冲击韧性/(J·cm <sup>-2</sup> )
1#	室温	63.9
2#	室温	65.6
3#	100 °C	76.5
4#	100 °C	73.8

行为,确保在整个寿期内不发生各种腐蚀,需预先对铪材进行腐蚀性能试验。

铪板腐蚀性能试验的 3 个样品(8.2 mm×8.2 mm×8.2 mm)从轧制完成后的铪板上取出,表面进行抛光处理。在 316 °C、18 MPa 的去离子水中进行 672~680 h 腐蚀试验(表 4),平均增重 6.12 mg/dm<sup>2</sup>,试验后铪试样呈干涉

色,其耐腐蚀性能满足 ASTM B766 要求。

表 4 铪板腐蚀试验结果

Table 4 Result of corrosion test for hafnium plate

编号	增重/(mg·dm <sup>-2</sup> )	试样表面观察	
		试验前	试验后
1#	5.75	白光亮	干涉色
2#	6.79	白光亮	干涉色
3#	5.84	白光亮	干涉色
ASTM	10	白光亮	干涉色

## 5 物理性能

对铪板的线膨胀系数、导热系数、泊松比、弹性模量等物理性能进行测试。试验结果列于表 5。

表 5 铪板各种物理性能试验结果

Table 5 Physical characteristics of hafnium plate

类别	10 <sup>-6</sup> 平均线膨胀系数/℃	导热系数/(W·m <sup>-1</sup> ·°C <sup>-1</sup> )		泊松比	弹性模量/GPa	
	20~55 °C	20 °C	55 °C	20 °C	20 °C	100 °C
试验结果	5.77	23.5	22.9	0.22	120	121
文献数据 <sup>[2]</sup>	5.9	—	22.3	0.367	145	141

## 6 结论

反应堆控制棒铪材制造工艺合理,其化学成分、机械性能和腐蚀性能均达到或超过 ASTM B776 核级铪材标准的要求,能满足反应堆控制棒材料的使用要求。本工作的研究成果可为国内控制棒用铪材的冶炼、材料组织缺陷控制、热处理、轧制工艺和机械加工性能等方面提供参考。

## 参考文献:

[1] 熊炳昆. 金属铪的制备和应用[J]. 稀有金属快报, 2005, 24(5): 46-47.

XIONG Bingkun. Preparation and application of metal hafnium[J]. Rare Metals Letters, 2005, 24(5): 46-47(in Chinese).

[2] BECHADE J L, PARMENTIER P. Fabrication and metallurgical properties of hafnium alloys for control rods[C]// Conference of Control Assembly Materials for Water Reactors: Experience, Performance and Perspectives. Vienna: IAEA, 1998: 156-157.

[3] RISHL D M, SMEE J D, KAMMENZIND B F. The corrosion behavior of hafnium in high-temperature water environments[J]. Journal of Nuclear Materials, 2002, 303: 210-225.